

Светличный Д. Г., студент
Жиганов А. Н., доц., канд. физ.-мат. наук
Некрасов К. А., доц., канд. физ.-мат. наук
Купряжкин А. Я., проф., д-р физ.-мат. наук

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПЛАВЛЕНИЯ ДИОКСИДА УРАНА МЕТОДОМ МОЛЕКУЛЯРНОЙ ДИНАМИКИ

Для предсказания поведения и изменения свойств оксидного топлива ядерных реакторов в ходе эксплуатации актуально его машинное моделирование на атомарном уровне. Соответственно необходимо создание эффективных алгоритмов и быстродействующих программ такого моделирования. Нами разработан оригинальный пакет программ для моделирования оксидной нанокерамики методом молекулярной динамики, достаточно эффективный для воспроизведения экспериментальных зависимостей коэффициентов самодиффузии ионов от температуры, получения энергий активации диффузии и собственного разупорядочения кристаллов, изучения фазовых переходов. Настоящая работа посвящена моделированию плавления стехиометрического диоксида урана.

При моделировании использовались нулевые граничные условия и потенциалы взаимодействия ионов с модифицированными зарядами кислорода и урана, $q_- = -1.985e$ и $q_+ = 3.817e$, соответственно. Применение нецелочисленных зарядов позволило точно воспроизвести экспериментальный низкотемпературный период решетки. Модельные кристаллиты включали в себя до 6144 ионов. Они генерировались с учетом требований нулевого суммарного заряда и дипольного момента системы. Использовался шаг интегрирования по времени $\Delta t = 5 \cdot 10^{-15} \text{ с}$.

Наступление плавления модельных кристаллитов регистрировали по резкому возрастанию среднеквадратичного смещения ионов урана (которые, в отличие от ионов кислорода, вплоть до самого плавления малоподвижны) и по снижению температуры, обусловленному поглощением энергии плавления. За температуру плавления принималась температура расплава.

В работе получены зависимости температуры плавления модельных кристаллов диоксида урана от размера. С увеличением линейных размеров нанокристалла от $4a = 22.5 \text{ \AA}$ до $8a = 45 \text{ \AA}$ ($a = 5.625 \text{ \AA}$ – расчетный период решетки при $T = 3000 \text{ K}$) температура плавления возрастает от 2450 K до 3250 K , с выходом на «плато». Такое поведение соответствует экспериментальным данным для нанокристаллов, температура плавления которых действительно снижается при уменьшении размеров. Количественно положение «плато» близко к экспериментальному значению температуры плавления макроскопических кристаллов, $T_{\text{пл.}} = 3150 \text{ K}$.

Для сравнения, зависимости от размера были получены также для температур плавления, рассчитанных при целочисленных зарядах ионов $q_- = -2e$, $q_+ = 4e$. Оказалось, что при этом температуры плавления существенно занижены. Кроме того, проведено сравнение температур плавления,

рассчитанных без коррекции температуры и с искусственной коррекцией, направленной на компенсацию медленного роста температуры, обусловленного накоплением вычислительных погрешностей. Коррекция температуры несколько завышала температуры плавления, что означает необходимость разработки лучших алгоритмов коррекции, минимально искажающих поведение кристалла.

Таким образом, в работе показано, что метод молекулярной динамики, при использовании корректных потенциалов взаимодействия, обеспечивает количественно точное моделирование плавления нанокристаллов диоксида урана. Вместе с полученными ранее хорошими результатами моделирования самодиффузии и собственного ионного разупорядочения диоксида урана этот результат указывает на то, что метод молекулярной динамики в принципе применим для определения эксплуатационных характеристик оксидного топлива ядерных реакторов в широком диапазоне температур, вплоть до температуры плавления.